

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2000年12月22日

出願番号

Application Number:

特願2000-391422

出願人

Applicant(s):

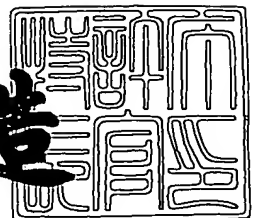
日本ピラー工業株式会社



2001年 9月26日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3088374

【書類名】 特許願

【整理番号】 P001222-2

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01M 8/02

【発明者】

【住所又は居所】 大阪市淀川区野中南 2 丁目 1 1 番 4 8 号 日本ピラー工業株式会社内

【氏名】 大多和 一彦

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県三田市下内神字打場 5 4 1 番地の 1 日本ピラー工業株式会社 三田工場内

【氏名】 加藤 省二

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県三田市下内神字打場 5 4 1 番地の 1 日本ピラー工業株式会社 三田工場内

【氏名】 杉田 克紀

【特許出願人】

【識別番号】 000229737

【氏名又は名称】 日本ピラー工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100091683

【弁理士】

【氏名又は名称】 △吉▽川 俊雄

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 021360

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】	要約書	1
【ブルーフの要否】	要	

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池用セパレータ及びその製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 表面がフェノール樹脂で被覆された黒鉛粉末を成型型に充填し所定のセパレータ形状に加圧成形して形成された成形体より成ることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 2】 上記成形体が、樹脂量 10～24 wt%で、曲げ強度 40 MPa 以上、ガス透過率 $10 \times 10^{-8} \text{cc} \cdot \text{cm}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{atm}$ 以下、体積抵抗 $10 \times 10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下の材質特性を有することを特徴とする請求項 1 の燃料電池用セパレータ。

【請求項 3】 表面が樹脂で被覆された平均粒子径 15～125 μm の黒鉛粉末を成形圧 100～1000 kg/cm^2 、成形温度 120～240℃で所定のセパレータ形状に加圧成形することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、燃料電池用セパレータ及びその製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

例えば固体高分子型の燃料電池は、固体高分子膜を挟んでアノード電極およびカソード電極とセパレータとを設けて単セルを構成し、この単セルを数百個のオーダーで積み重ねて形成されている。アノード電極側に、セパレータに形成されたガス供給溝を通して水素等の燃料ガスを供給し、カソード電極側に酸素等の酸化ガスを供給して電気化学反応を生じさせて、燃料が有する化学エネルギーを電気エネルギーに変換し出力するようになっている。

【0003】

このような燃料電池に用いられるセパレータの材質特性としては、各単セルで発生した電流がこれらセパレータを通して流れ、また、隣接する単セルは、各々のセパレータを相互に密着させることで、回路的に直列接続構造となるように形

成されることから、セパレータ自身の固有抵抗（以下、体積抵抗ともいう）と共に、セパレータ同士を重ねて締付けたときのセパレータ表面間およびセパレータとそれに密着する電極接面間の接触抵抗が極力小さいことが要求される。

【 0 0 0 4 】

また、燃料ガスと酸化ガスとを完全に分離した状態で各々の電極に供給するために、高度のガス不透過性が必要とされる。さらに、前記したように、多数の単セルを積層して組立てられることから、セパレータの肉厚をできるだけ薄くし、かつ、このように薄肉化した場合でも、何百枚にも及ぶセパレータをスタックし、それらを締め付けて固定することで燃料電池が組立てられる関係から、十分な機械的強度を有し、また、良好な成形精度が得られることが要求される。

【 0 0 0 5 】

このような特性が要求されるセパレータとして、例えば純銅やステンレス鋼などの金属板を用いたものが知られているが、これら金属系の材料では、燃料ガスとしての水素ガスが接触するために水素脆性による材質劣化等が生じ易く、長期安定性に欠けるという問題がある。

【 0 0 0 6 】

そこで近年、黒鉛粉末に、結合剤（バインダー）としてフェノール樹脂などの熱硬化性樹脂を配合し、加圧成形した成形体をセパレータとして採用した燃料電池の開発が進められている。黒鉛材は電気抵抗が小さく、しかも、耐食性に優れることから、上記した金属板を用いた場合の不具合が改善される。また、圧粉成形体内部に生じる気孔空隙が上記のようなバインダーで埋められることで、ある程度のガス不透過性を得ることができる。

【 0 0 0 7 】

このような黒鉛製セパレータは、従来、例えばパウダー状のフェノール樹脂などの熱硬化性樹脂とアルコールなどの揮発性の有機溶媒とを攪拌してスラリー状とし、これを黒鉛粉に配合して混練した後に乾燥し、次いで、所定の平均粒径となるまで粉碎する工程を経て製造された樹脂配合黒鉛粉を用いて作製されている。上記の粉碎工程で、混練により非導電性の樹脂により表面が覆われた黒鉛粉が解砕され、これに伴って黒鉛面が露出した原料粉が形成される。次いで、この原

料粉を所定の金型に充填し、加圧成形することによって燃料電池用セパレータが形成されている。

【0008】

この場合、樹脂量が多い程、機械的強度やガス不透過性が良好となる。したがって従来は、まず燃料電池用セパレータとして必要な機械的強度やガス不透過性の要件を満足させ得る樹脂量を定めて黒鉛製セパレータが製造されている。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上述したような製造法により形成される従来の黒鉛製セパレータでは、体積抵抗等の電気的特性は必ずしも十分に満足し得るものとはなっていない。つまり、この電気的特性は樹脂量が少ないほど良好となるものの、樹脂量を少なくすると機械的強度やガス不透過性が低下することから、従来は樹脂量をそれ程少なくすることができず、このために良好な電気的特性を併せもつものとはなっていない。

【0010】

本発明は、上記した問題点に鑑みなされたものであって、その目的は、機械的強度やガス不透過性と共に、電気的特性にも優れた黒鉛製の燃料電池用セパレータおよびその製造方法を提供することにある。

【0011】

【課題を解決するための手段】

本発明の燃料電池用セパレータは、表面が樹脂で被覆された黒鉛粉末を成型型に充填し所定のセパレータ形状に加圧成形して形成された成形体より成ることを特徴としている。

【0012】

つまり、従来の黒鉛製セパレータは、樹脂と黒鉛粉とを混練した後、成形後の導電性を考慮して、加圧成形前に、粉碎工程を通して黒鉛面が露出した原料粉を得、これを加圧成形することによって製造されている。したがって、黒鉛粉の表面には樹脂が部分的に付着した状態であり、このような原料粉では、成型型内に充填して加圧成形しても、個々の粒子について樹脂を介しての等方的な流動性は

得られない。すなわち、黒鉛粉を樹脂により十分被覆することができず、このため、粒子間に比較的大きな気孔空隙等が残った成形体となり易い。この結果、樹脂量を少なくすると、強度やガス不透過性の低下が生じるものとなっている。

【0013】

これに対し、本発明のセパレータは、表面が樹脂であらかじめ十分に被覆された黒鉛粉を成形型に充填し加圧成形して形成されるものであり、この場合には、成形型内での個々の黒鉛粉の流動性が向上して空隙率の小さな成形体となり、また、隣接する黒鉛粉同士は、この間の樹脂が加圧成形時に黒鉛粉間の空隙に向けて排除されて相互に密着し、これによって、黒鉛粉間の導電性もこの加圧成形時に付与される。

【0014】

したがって、例えば表面が樹脂で被覆された粒子径 $15 \sim 125 \mu\text{m}$ の黒鉛粉を成形圧 $100 \sim 1000 \text{ kg/cm}^2$ 、成形温度 $120 \sim 240^\circ\text{C}$ で加圧成形することによって、樹脂量が $10 \sim 24 \text{ wt}\%$ の少ない量であっても、曲げ強度 40 MPa 以上で機械的強度に優れ、また、ガス透過率 $10 \times 10^{-8} \text{ cc} \cdot \text{cm/cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{atm}$ 以下で、しかも、体積抵抗 $10 \times 10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下の優れた電気的特性を具備する成形体を得ることができ、これを燃料電池用セパレータとして好適に使用することができる。

【0015】

【発明の実施の形態】

初めに、本発明に係るセパレータを用いて構成される固体高分子型燃料電池の構成および動作について、一般的なセパレータの模式図を用いて説明する。この燃料電池は、図2に示すように、例えばフッ素系樹脂により形成されたイオン交換膜である固体高分子膜1と、この固体高分子膜1を両側から挟むアノード電極2およびカソード電極3と、これらをさらに両側から挟むセパレータ4・4とから成る単セル5を数百個のオーダで積層し、その両端に図示省略した集電板を配置したスタック構造に形成されている。アノード電極2およびカソード電極3は、炭素繊維系で織成したカーボクロスやカーボンペーパー或いはカーボンフェルトにより形成されている。

【 0 0 1 6 】

各セパレータ 4 には、図 3 に示すように、その周辺部に、水素を含有する燃料ガスが流れる燃料ガス孔 6・7 と、酸素を含有する酸化ガスが流れる酸化ガス孔 8・9 とが形成されている。単セル 5 を積層したとき、これら各孔 6～9 が燃料電池の内部をそれぞれ長手方向に貫通して、燃料ガス供給マニホールド、燃料ガス排出マニホールド、酸化ガス供給マニホールド、酸化ガス排出マニホールドが形成される。

【 0 0 1 7 】

上記各孔 6～9 の内側表面には任意パターンの溝部 1 2 からなる流路が形成されている。この溝部 1 2 のパターンは、図示した形状の他、例えば多数の突起間に格子状に設けられたものであってもよい。この溝部 1 2 により、図 2 に示すように、アノード電極 2 側のセパレータ 4 では、アノード電極 2 表面との間に燃料ガス流路 1 3 が形成され、隣接するセパレータ 4 との間に冷却水流路 1 4 が形成される。一方、カソード電極 3 側のセパレータ 4 では、カソード電極 3 表面との間に酸化ガス流路 1 5 が形成される。

【 0 0 1 8 】

上記構成の燃料電池においては、外部に設けられた燃料ガス供給装置から供給された水素を含有する燃料ガスが、前記した燃料ガス供給マニホールドを経由して各単セル 5 の燃料ガス流路 1 3 に供給され、各単セル 5 のアノード電極 2 側において $\text{H}_2 \rightarrow 2 \text{H}^+ + 2 \text{e}^-$ の電気化学反応が生じる。反応後の燃料ガスは各単セル 5 の燃料ガス流路 1 3 から燃料ガス排出マニホールドを経由して外部に排出される。

【 0 0 1 9 】

同時に、外部に設けられた酸化ガス供給装置から供給された酸素を含有する酸化ガス（空気）が前記酸化ガス供給マニホールドを経由して各単セル 5 の酸化ガス流路 1 5 に供給され、各単セル 5 のカソード電極 3 側で $\text{O}_2 + 4 \text{H}^+ + 4 \text{e}^- \rightarrow 2 \text{H}_2\text{O}$ の電気化学反応が生じる。反応後の酸化ガスは各単セル 5 の酸化ガス流路 1 5 から酸化ガス排出マニホールドを経由して外部に排出される。

【 0 0 2 0 】

上記した電気化学反応に伴い、全体としては $2\text{H}_2 + \text{O}_2 \rightarrow 2\text{H}_2\text{O}$ の電気化学反応が進行し、この反応によって、燃料が有する化学エネルギーが電気エネルギーに変換され所定の電池性能が発揮される。なお、この燃料電池は約 $80 \sim 100^\circ\text{C}$ の温度範囲で運転されるが、運転中は外部に設けられた冷却水供給装置から冷却水が供給され、これが前記冷却水路 14 を通して循環されることによって、上記の温度範囲に保持されるようになっている。

【0021】

上記したセパレータ 4 は、通常、厚さ $1 \sim 3\text{mm}$ 程度の薄板状に形成され、深さ $0.3 \sim 1.5\text{mm}$ 程度の溝部 12 が、アノード電極 2 側のセパレータ 4 ではその両面に、カソード電極 3 側のセパレータ 4 ではその片面に設けられて、前記した燃料ガス流路 13 や冷却水流路 14 ・酸化ガス流路 15 が形成されている。

【0022】

上記のような固体高分子型燃料電池に適用される本発明のセパレータは、表面に樹脂が被覆された黒鉛粉末を、後述する成形条件に従って上記したセパレータ形状に加圧成形した成形体から成っている。この成形体における樹脂量は $10 \sim 24\text{wt}\%$ 程度と従来よりも少ないものの、曲げ強度 40MPa 以上の優れた機械的強度と、ガス透過率が $10 \times 10^{-8}\text{cc} \cdot \text{cm}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{atm}$ 以下の材質特性を有し、しかも体積抵抗 $10 \times 10^{-3}\Omega \cdot \text{cm}$ 以下の優れた電気的特性を有している。以下、このような黒鉛製セパレータの製造法について説明する。

【0023】

まず使用する黒鉛粉末は、天然黒鉛、人造黒鉛、カーボンブラック、キッシュ黒鉛、膨脹黒鉛等、いかなる種類のものを用いても良く、コストなどの条件を考慮して任意に選択することができる。天然黒鉛や人工黒鉛が電気特性の点で好ましい。用いる黒鉛粉末の平均粒径は、 $15 \sim 125\mu\text{m}$ の範囲であることが好ましい。 $15\mu\text{m}$ より小さいと電気抵抗を十分に小さなものとすることができず、 $125\mu\text{m}$ を超えると強度が弱くなる。

【0024】

樹脂としては、黒鉛粉末との濡れ性に優れたフェノール樹脂が最も好ましい。レゾール系樹脂やノボラック系樹脂の何れでも良い。

【0025】

このような樹脂が被覆された黒鉛粉末の製造方法に特に制限はなく、例えば、メタノール等の粘度の小さい有機溶剤で希釈化した樹脂溶液、例えばフェノール樹脂溶液に黒鉛粉末を配合し、スラリー状になるまで攪拌混練した後、スプレードライヤーで造粒乾燥させるような方法によって製造することができる。この場合に、成形体を形成後の樹脂量が10～24wt%、好ましくは14～18wt%となるように、上記した攪拌混練時の配合量を調整する。樹脂量が10wt%より少ないと、良好なガス不透過性が得難くなり、24wt%を越えると体積抵抗や後述する接触抵抗が大きくなる。

【0026】

また、樹脂の原料溶液攪拌中に黒鉛粉表面で樹脂の重合反応が生じるような方法によって樹脂被覆黒鉛粉を製造することも可能である。例えばフェノール樹脂を被覆する場合に、フェノール類とホルムアルデヒド類および反応触媒や一般的な反応溶媒を仕込んだ反応容器内に黒鉛粉をさらに投入し、混合攪拌しつつ所定の温度に加熱することによって、フェノール樹脂が黒鉛粉表面、さらに層状の黒鉛粉内に入り込んで強固に付着した樹脂被覆黒鉛粉を製造することができる。

【0027】

なお上記でフェノール類とは、フェノールおよびフェノールの誘導体を意味するもので、例えばフェノールの他に m -クレゾール、レゾルシノール、3,5-キシレノールなどの3官能性のもの、ビスフェノールA、ジヒドロキシジフェニルメタンなどの4官能性のもの、 o -クレゾール、 p -クレゾール、 p -terブチルフェノール、 p -フェニルフェノール、 p -クミルフェノール、 p -ノニルフェノール、2,4又は2,6-キシレノールなどの2官能性の o -又は p -置換のフェノール類などを挙げるることができる。さらに塩素または臭素で置換されたハロゲン化フェノールなども使用することが可能であり、また、これらから一種類選択して用いる他、複数種のを混合して用いることもできる。

【0028】

ホルムアルデヒド類としてはホルマリンが最適であるが、パラホルムアルデヒドのような形態のものを用いることもでき、その他ホルムアルデヒドの一部ある

いは大部分をフルフラールやフルフリルアルコールに置き換えて用いることも可能である。

【 0 0 2 9 】

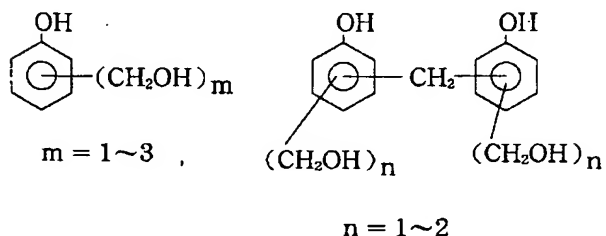
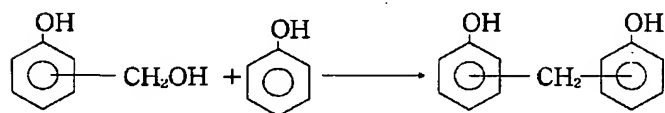
反応触媒としては、フェノール樹脂の最終的な構造式としては、フェノール類のベンゼン核とベンゼン核との間に $-NCH_2$ または $-OCH_2$ 結合または $-SCH_2$ 結合を生成するような物質が良い。例えばヘキサメチレンテトラミン、アンモニア及びメチルアミン、ジメチルアミン、エチレンジアミン、モノエタノールアミン等の第1級や第2級のアミン類などの塩基性物質を用いることができる。さらにこれらと併用して、アルカリ金属やアルカリ土類金属の水酸化物や第3級アミンなど、フェノール樹脂の合成時に一般によく使用される塩基性触媒を用いることも可能である。

【 0 0 3 0 】

一般的な反応式としては下記の化1、化2に示す反応式が挙げられる。

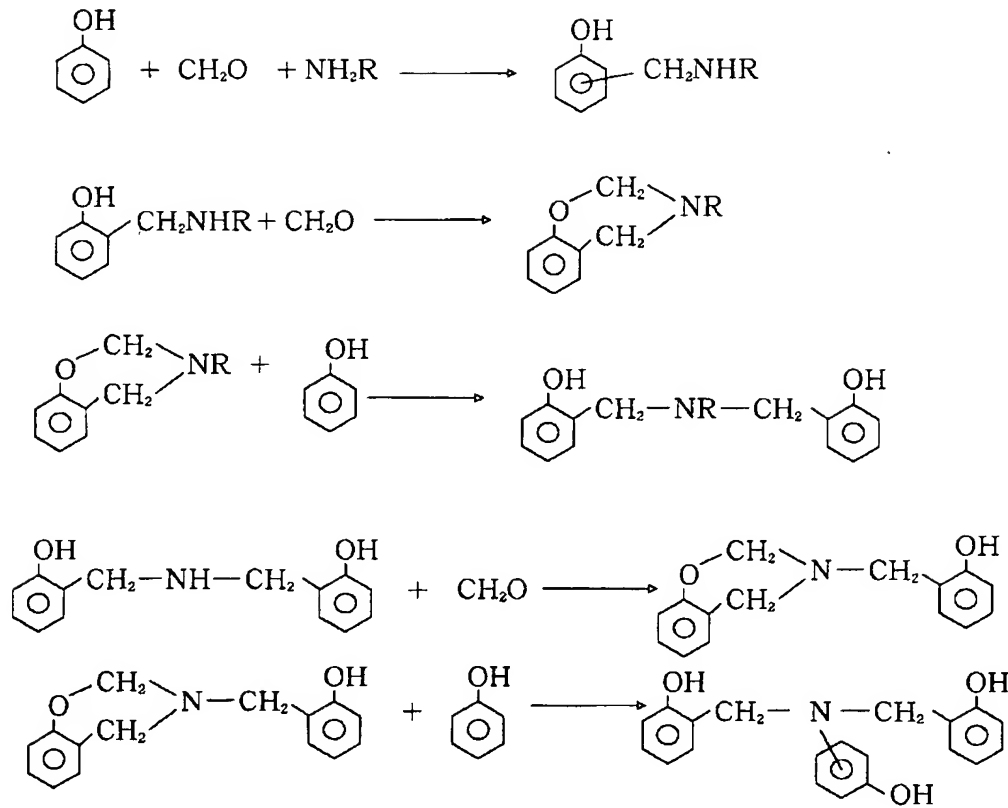
【 0 0 3 1 】

【化1】



【 0 0 3 2 】

【化 2】



(式中、Rは水素またはメチル基、エチル基等の低級アルキル基を示す)

【0033】

得られるフェノール樹脂としては、例えば化1、化2に示したようなフェノール樹脂の他に、ベンゼン核間に $-\text{SCH}_2$ 結合を有するフェノール樹脂が挙げられる。

【0034】

これらフェノール類とホルムアルデヒド類及び反応触媒を反応釜など反応容器に入れ、さらに黒鉛粉末を配合して、この黒鉛粉末の存在下でフェノール類とホルムアルデヒド類との反応を行わせる。これにより、フェノール樹脂が黒鉛粉表面に強固に付着した樹脂被覆黒鉛粉を得ることができる。

【0035】

上記のような製造法により得られる樹脂被覆黒鉛粉を、所定のセパレータ形状に対応する成形空間を有する金型に充填し、成形圧力 $100 \sim 1000 \text{ kg/cm}^2$ 、

成形温度 120～240℃の成形条件で加圧成形する。成形圧力が 100 kg/cm²未満であると、得られる成形体密度が小さく、体積抵抗が大きくなって導電性に優れたセパレータを得難くなる。一方、1000 kg/cm²を超える過度の面圧を加えると、樹脂が黒鉛粉間から押し出されて成形体周辺領域に偏在する現象が顕著になり始め、このために後述する接触抵抗が大きくなる。

【0036】

成形温度は、樹脂の加熱特性に応じて適宜設定されるものであるが、樹脂量が少ない場合の成形型内での黒鉛粉末の流動性等、良好な成形性が得られるように、通常は上記のように 120℃以上の温度に設定することが好ましい。240℃を超えると成形体の膨れ現象が発生し、さらに高温になると樹脂の炭化が発生する。

【0037】

このように、本発明のセパレータは、図 1 に模式的に示すように、表面が樹脂 20 で被覆された黒鉛粉 21 を用い、これを成形金型に充填して、上記した成形条件で成形して製造される。この加圧成形過程では、当初に加熱に伴って軟化する樹脂により、個々の黒鉛粉が成形型内で樹脂に相当する流動性を示し、これによって樹脂が硬化した後も金型に良くなじんだ成形体、すなわち、形状精度の良好な成形体を得ることができる。

【0038】

また、個々の原料黒鉛粉 21 の表面を覆う樹脂 20 は、相互に接触した原料黒鉛粉 21 間の領域 A では、さらに成形圧が加えられる過程で、各原料黒鉛粉 21 の表面に沿って各原料黒鉛粉 21 間の空隙 B に向かって流動する。この結果、隣接する原料黒鉛粉 21 の表面同士が相互に接触し、これら原料黒鉛粉 21 間に良好な導通状態が形成される。また、上記のように相互に接触する領域から押し出される樹脂は、各原料黒鉛粉 21 によって囲われる隙間に集まってこの隙間に充填されることになる。このように個々の原料黒鉛粉 21 回りの樹脂 20 の流動が成形型内の全体にわたってむらなく生じることによって、隙間を囲う原料黒鉛粉 21 同士も、この隙間を埋める樹脂を介して強固に接合された成形体となる。

【0039】

このように、表面が個々に樹脂で覆われた原料黒鉛粉を用いることで、樹脂量を少なくしても、各原料黒鉛粉間に生じる隙間に樹脂がほぼもれなく充填された成形体を得られ、これによって機械的強度に優れ、また、ガス透過率の小さな成形体が製造される。

【0040】

しかも、上記のような加圧成形条件によって、隣接する原料黒鉛粉間の領域では、この間から原料黒鉛粉間の隙間へと樹脂が排出され、これら原料黒鉛粉同士を相互に接触させて良好な導通状態が得られるようにすることができるので、全体的な樹脂量が少ないことと相まって、体積抵抗が $10 \times 10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下の電気的特性にも優れた成形体を得ることができる。

【0041】

特に前記したように、単セル5が数百個のオーダーで積層されて構成される燃料電池においては、その内部抵抗は、セパレータ自身の体積抵抗に加え、隣接する単セル5・5において相互に密着するセパレータ同士の接触抵抗に、より大きく左右される。本発明の黒鉛製セパレータでは、このような接触抵抗も極めて小さなものとなっている。すなわち、従来の黒鉛製セパレータでは、前述した理由から樹脂量を例えば30wt%程度以下には少なくすることができず、このような量の樹脂を配合した黒鉛粉を加圧成形する際には、樹脂が黒鉛粉間から成形体周辺へと押し出されて成形体表面での樹脂の割合が大きくなる。この結果、上述したような接触抵抗も大きなものとなる。

【0042】

これに対し、本発明のセパレータでは樹脂量を24wt%以下と少なくしても、所望の機械的強度やガス不透過性を維持できるので、上記のような接触抵抗も小さなセパレータとなる。したがって、このようなセパレータを用いることによって内部抵抗が小さく、発電効率に優れた燃料電池を形成することができる。また、セパレータの厚さをより薄くすることが可能ともなり、これによって、より小型でかつ軽量の燃料電池を形成することができる。

【0043】

【実施例】

以下、実施例を挙げて本発明を説明するが、本発明はこれら実施例や、上記した実施形態に限定されるものではなく、本発明の範囲内で種々変更することが可能である。

実施例 1

反応容器に、平均粒径が $100\ \mu\text{m}$ の黒鉛粉末と、フェノールと、ホルムアルデヒドと、反応触媒（ヘキサメチレンテトラミン又はアンモニアと苛性ソーダ液）と、反応溶媒とを仕込み、これを混合攪拌しつつ 80°C で 1 時間加熱した。反応容器の内容物を室温に冷却し攪拌を停止した後、反応容器内で溶媒から分離して沈降している黒色の粒状物を取り出して水洗した。これを濾過して溶媒から分離し乾燥することにより樹脂被覆黒鉛粉を得た。この樹脂被覆黒鉛粉の樹脂量は 14% であった。

【0044】

次いで、この樹脂被覆黒鉛粉を成型型に充填し、成型圧 $200\ \text{kg}/\text{cm}^2$ 、成型温度 160°C で加圧成形し、後述する各種特性測定用の試験片を作製した。

【0045】

実施例 2

実施例 1 において、原料黒鉛粉として平均粒径が $60\ \mu\text{m}$ のものを用いた以外は実施例 1 と同様にして、樹脂被覆黒鉛粉を製造した。この樹脂被覆黒鉛粉の樹脂量は 18% であった。次いで、この樹脂被覆黒鉛粉を用いて、実施例 1 と同様の成形条件で成形して、上記同様に試験片を作製した。

【0046】

実施例 3

実施例 1 において、原料黒鉛粉として平均粒径が $45\ \mu\text{m}$ のものを用いた以外は実施例 1 と同様にして、樹脂被覆黒鉛粉を製造した。この樹脂被覆黒鉛粉の樹脂量は 21% であった。次いで、この樹脂被覆黒鉛粉を用いて、実施例 1 と同様の成形条件で成形して、上記同様に試験片を作製した。

【0047】

比較例 1

実施例 1 において、原料黒鉛粉として平均粒径が $25\ \mu\text{m}$ のものを用いた以外

は実施例 1 と同様にして、樹脂被覆黒鉛粉を製造した。この樹脂被覆黒鉛粉の樹脂量は 2 5 % であった。次いで、この樹脂被覆黒鉛粉を用いて、実施例 1 と同様の成形条件で成形して、上記同様に試験片を作製した。

【 0 0 4 8 】

比較例 2

実施例 1 において、原料黒鉛粉として平均粒径が $130\mu\text{m}$ のものを用いた以外は実施例 1 と同様にして、樹脂被覆黒鉛粉を製造した。この樹脂被覆黒鉛粉の樹脂量は 8 % であった。次いで、この樹脂被覆黒鉛粉を用いて、実施例 1 と同様の成形条件で成形して、上記同様に試験片を作製した。

【 0 0 4 9 】

比較例 3

パウダー状のフェノール樹脂をボールミルで粉碎混合した後、メタノールを加えてスラリー状にし、これに、実施例 1 で用いたのと同様の平均粒子径 $125\mu\text{m}$ の原料黒鉛粉を加え、攪拌し 60°C で乾燥した後、ミキサーで粉碎して、樹脂－黒鉛混合粉を得た。なお、フェノール樹脂の粉碎混合に当たり、途中でステアリン酸マグネシウムを添加した。

【 0 0 5 0 】

上記で得られた樹脂－黒鉛混合粉での樹脂量は 1 8 % であり、この混合粉を用いて、実施例 1 と同様の成形条件で加圧成形して、前記同様に試験片を作製した。

【 0 0 5 1 】

実施例 1 ～ 3 および比較例 1 ～ 3 で各々得られた各試験片を用いて、圧縮強度・曲げ強度・接触抵抗・固有抵抗・ガス透過率を以下の測定法に従って測定した。結果を表 1 に示している。

測定方法

(1) 圧縮強度

JIS K 7208 に準じて測定した（試験片：□ 10mm ×高さ 4mm ）。

(2) 曲げ強度

JIS K 7203 に準じて測定した（試験片：幅 10mm ×高さ 4mm ×長さ 80mm ）。

(3) 接触抵抗

2枚の試験片（□20mm×厚さ1mm）を測定電極間に重ねて配置し、接触面圧25kg/cm²で加圧し、電流1A流した時の電圧を測定して接触抵抗を求めた。

(4) 固有抵抗

体積抵抗率をJIS K 7194に準じて測定した（板厚2mm）。

(5) ガス透過率

試験片を挟んで1atmの差圧を生じさせた状態で窒素ガスのガス透過量を測定し、ガス透過率を求めた。

【0052】

【表1】

		黒鉛 平均 粒径 μm	樹脂量 %	圧縮 強度 MPa	曲げ 強度 MPa	接触抵抗 Ω・cm ²	固有抵抗 Ω・cm	ガス透過率 $\frac{\text{cc} \cdot \text{cm}}{\text{cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{atm}}$
実 施 例	1	100	14	62	44	5×10^{-3}	3×10^{-3}	5×10^{-8} 以下
	2	60	18	81	49	8×10^{-3}	6×10^{-3}	〃
	3	45	21	94	53	8×10^{-3}	6×10^{-3}	〃
比 較 例	1	25	25	113	60	15×10^{-3}	11×10^{-3}	〃
	2	130	8	50	30	5×10^{-3}	3×10^{-3}	5×10^{-6}
	3	125	18	60	38	10×10^{-3}	8.7×10^{-3}	5×10^{-4}

表1に示されているように、樹脂被覆黒鉛粉を用いた場合でも、樹脂量が24wt%を超えた比較例1では接触抵抗や固有抵抗が大きく、また、樹脂量が10%未満の比較例2では、圧縮強度や曲げ強度が小さく、かつ、ガス透過率も大きなものになっている。一方、樹脂被覆黒鉛粉の代わりに、樹脂に黒鉛粉を加えて攪拌した後、粉碎して形成された樹脂－黒鉛混合粉を用いた比較例3では、曲げ強度が小さく、また、接触抵抗や固有抵抗と共にガス不透過性に劣ったものになっている。

【0053】

これに対し、平均粒径10～125μm、樹脂量10～24wt%の樹脂被覆黒

鉛粉を用いた実施例 1 ～ 3 では、圧縮強度や曲げ強度に優れ、しかもガス透過率と共に、接触抵抗・固有抵抗の小さな成形体を得られている。

【 0 0 5 4 】

なお、さらに成形精度測定用の試験片（厚さ 1.5mm×縦 250mm×横 250mm）を作製し、格子状に 25 点の厚さを測定して、その平均値と、平均値からの各計測値の差とを求めて成形精度を評価したところ、実施例 1 ～ 3 のいずれも厚さ精度が $\pm 15 \mu m$ 以下で、成形精度も良好であった。

【 0 0 5 5 】

【発明の効果】

以上のように、表面が樹脂で被覆された黒鉛粉末を加圧成形することによって得られた本発明のセパレータは、優れた機械的強度と、ガス不透過性および電気的特性とを有するので、これを用いることによって性能の優れた燃料電池を製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の燃料電池用セパレータの製造過程において樹脂被覆黒鉛粉を成形型内に充填し加圧する状態を示す断面模式図である。

【図 2】

燃料電池の構成を示す断面模式図である。

【図 3】

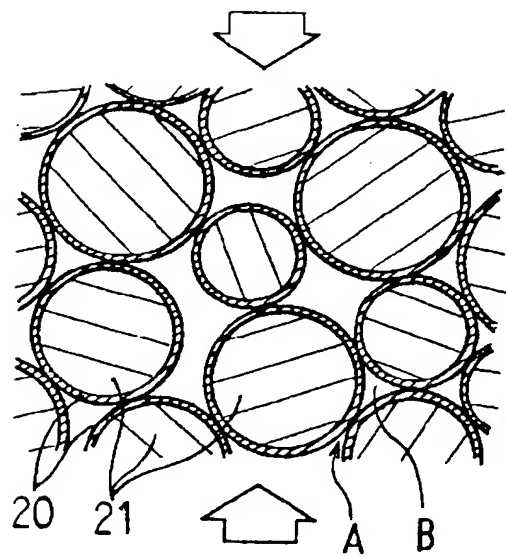
燃料電池に組み込まれているセパレータの正面図である。

【符号の説明】

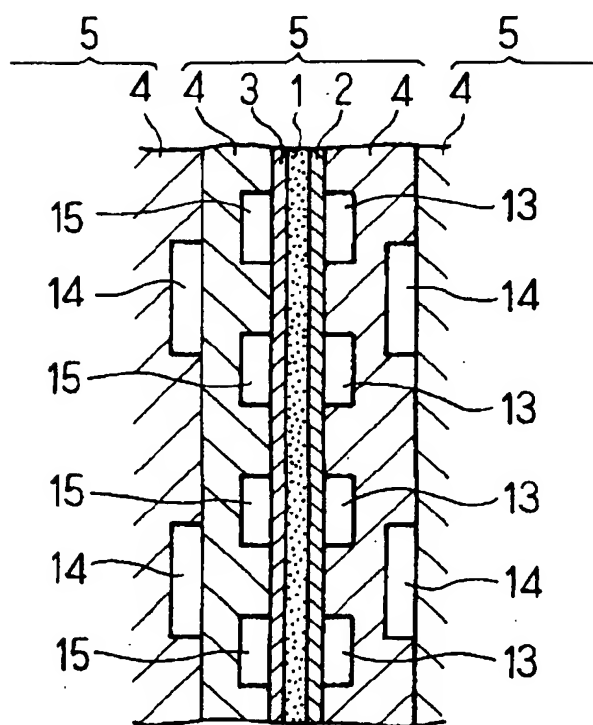
- 1 固体高分子膜
- 2 アノード電極
- 3 カソード電極
- 4 セパレータ
- 5 単セル
- 20 樹脂
- 21 黒鉛粉

【書類名】 図面

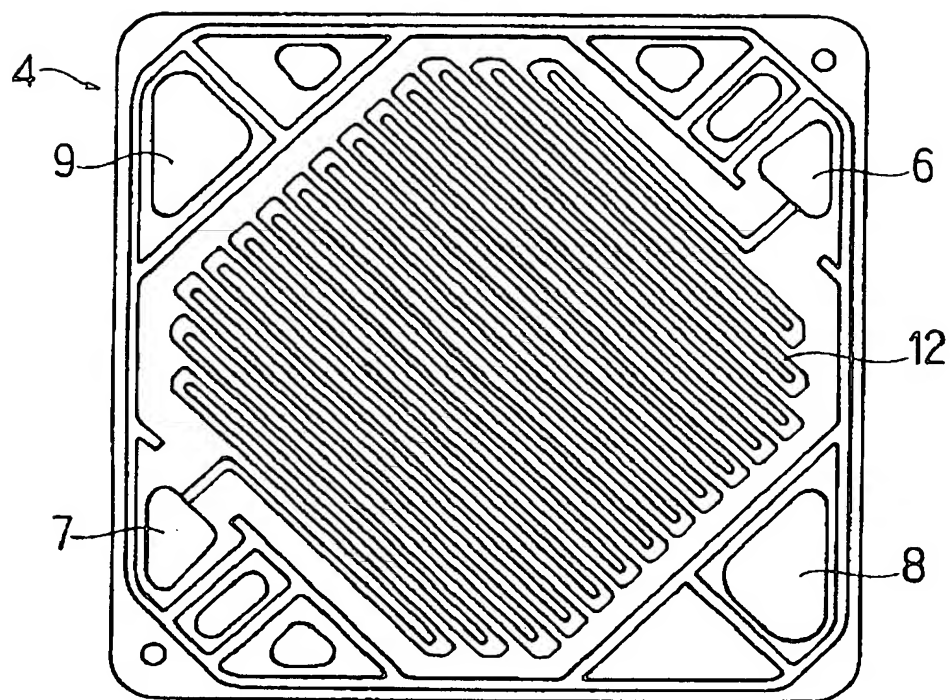
【図 1】



【図 2】



【図 3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 機械的強度やガス不透過性と共に、電気的特性にも優れた黒鉛製の燃料電池用セパレータを提供する。

【解決手段】 表面が樹脂 2 0 で被覆された黒鉛粉 2 1 を成形型に充填し、加圧成形して形成された成形体によって燃料電池用セパレータを形成する。このような成形体は、樹脂量を 1 0 ～ 2 4 wt% と少なくしても、曲げ強度 4 0 MPa 以上の優れた機械的強度を備え、また、ガス透過率 $1 0 \times 1 0^{-8} \text{cc} \cdot \text{cm}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{atm}$ 以下で、体積抵抗も $1 0 \times 1 0^{-3} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下の優れた電気的特性を備えている。

【選択図】 図 1

特 2 0 0 0 - 3 9 1 4 2 2

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 0 - 3 9 1 4 2 2
受付番号	5 0 0 0 1 6 6 3 5 7 3
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0 0 9 4
作成日	平成 1 2 年 1 2 月 2 5 日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成12年12月22日
-------	-------------

次頁無

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 2 2 9 7 3 7]

1. 変更年月日 1 9 9 0 年 8 月 2 3 日

[変更理由] 新規登録

住 所 大阪府大阪市淀川区野中南 2 丁目 1 1 番 4 8 号

氏 名 日本ピラー工業株式会社